

⑤1

Int. Cl. 2:

C 25 B 11/02

①9

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

DEUTSCHES



PATENTAMT

DT 26 56 109 A 1

①1

Offenlegungsschrift 26 56 109

②1

Aktenzeichen:

P 26 56 109.1

②2

Anmeldetag:

10. 12. 76

④3

Offenlegungstag:

23. 6. 77

③0

Unionspriorität:

③2 ③3 ③1

15. 12. 75 USA 640643

⑤4

Bezeichnung:

Bipolare Elektrode für Filterpressen-Elektrolysezellen und Verfahren zu deren Herstellung

⑦1

Anmelder:

Diamond Shamrock Corp., Cleveland, Ohio (V.St.A.)

⑦4

Vertreter:

Wuesthoff, F., Dr.-Ing.;
Pechmann, E. Frhr. von, Dipl.-Chem. Dr.rer.nat.; Behrens, D., Dr.-Ing.;
Goetz, R., Dipl.-Ing. Dipl.-Wirtsch.-Ing.; Pat.-Anwälte, 8000 München

⑦2

Erfinder:

Peters, Edward Joseph, Chardon, Ohio (V.St.A.)

DT 26 56 109 A 1

DR. ING. F. WURSTHOFF
DR. R. V. PROHMANN
DR. ING. D. BEHRNS
DIPL. ING. R. GOETZ
PATENTANWÄLTE

MÜNCHEN 80
SCHWEIGERSTRASSE 2
TELEFON (089) 662051
TELEX 524070
TELEGRAMME:
PROTECPATENT MÜNCHEN

1A/G-48 708

2656109

A N S R P Ü C H E

- (1) Bipolare Elektrode für Filterpressen-Elektrolysezellen aus coplanarer und im Abstand angeordneter Anode, Anodenrückenplatte, Kathode und Kathodenrückenplatte, g e - k e n n z e i c h n e t durch zwischen den beiden Rückenplatten im Abstand voneinander angeordnete und daran befestigte Leiterstreifen.
2. Bipolare Elektrode nach Anspruch 1, dadurch g e - k e n n z e i c h n e t , daß die Anode und Anodenrückenplatte aus Titan, die Kathode und Kathodenrückenplatte aus Stahl und die Leiterstreifen aus Kupfer bestehen.
3. Verfahren zur Herstellung der Elektroden nach Anspruch 1 und 2, dadurch g e k e n n z e i c h n e t , daß man die Leiterstreifen an die Rückenplatten durch Sprengplattieren bindet, wobei man zwischen den Leiterstreifen und den Platten einen Abstand von zumindest 25,4 μ m vorsieht, ein Sprengmittel mit einer Detonationsgeschwindigkeit von weniger als 120 % der Schallgeschwindigkeit des Metalls mit der höchsten Schallgeschwindigkeit anwendet und dieses so zündet, daß die Detonation parallel zu den Leiterstreifen fortschreitet und der Kollisionsdruck der Streifen auf der Platte größer ist als die Elastizitätsgrenze des Metalls mit der niedersten Elastizitätsgrenze.

8188

709825/0746
ORIGINAL INSPECTED

DR. ING. F. WUESTHOFF
DR. F. v. FROHMANN
DR. ING. D. BEHRENS
DIPL. ING. R. GÖTZ
PATENTANWÄLTE

8 MÜNCHEN 80
SCHWEIGENSTRASSE 2
TELEFON (089) 66 20 51
TELEX 524 070
TELEGRAMME:
PROTECTPATENT MUNICH

1.

2656109

1A-48 708

B e s c h r e i b u n g
zu der Patentanmeldung

Diamond Shamrock Corporation
1100 Superior Avenue, Cleveland
Ohio 44 114, U S A

betreffend:

"Bipolare Elektrode für Filterpressen-Elektrolysezellen
und Verfahren zu deren Herstellung"

Die Erfindung betrifft bipolare Elektroden für Filterpressen-Elektrolysezellen mit ihren elektrisch und mechanisch verbundenen Rückenplatten; die Herstellung dieser bipolaren Elektroden erfolgt nach dem Sprengplattierungsverfahren, wobei die Anode aus Titan, die Anodenrückenplatte ebenfalls aus Titan, die Abstandhalter aus Kupfer, die Kathode aus Stahl, die Kathodenrückenplatte ebenfalls aus Stahl bestehen.

In einer Filterpressen-Elektrolysezelle werden erfindungsgemäße bipolare Elektroden zwischen Diaphragmen oder Membranen angeordnet und in solchen Zellen die elektrochemische Bildung von Alkalihydroxiden und Halogenen angestrebt (Chloralkalielektrolyse). Die erfindungsgemäßen bipolaren Elektroden haben genügend freien Raum, um die

709825/0745

Wasserstoffentwicklung nicht zu beeinträchtigen und eine Versprödung der aus Titan bestehenden Anodenrückenplatte unter der Wasserstoffeinwirkung zu vermeiden.

Die Chloralkalielektrolyse erfolgt in großem Umfang mit sog. Diaphragmazellen. In diesen Zellen sind eine Vielzahl von Elektroden in Form einer Vielzahl von Reihen von abwechselnd in Abstand angeordneten Anoden und Kathoden vorgesehen. Diese Elektroden sind im allgemeinen durchbrochen und bestehen aus einem Netz oder Sieb, so daß an der Kathode ein hydraulisch durchlässiges Diaphragma gebildet werden kann. Diese Kammerzellen ermöglichen eine Flüssigkeitsströmung. Kontinuierlich wird Salzlösung in die Anodenkammer eingespeist, diese durchdringt das an der Kathode aufliegende Diaphragma. Um eine Rückdiffusion oder Wanderung durch das hydraulisch permeable Diaphragma minimal zu halten, wird die Strömungsgeschwindigkeit über der Umwandlungsgeschwindigkeit gehalten, so daß im Katholyt nicht-umgesetztes Alkalichlorid vorhanden ist. Dieser Katholyt enthält Natriumhydroxid, nicht-umgesetztes Natriumchlorid und verschiedene andere Verunreinigungen, er muß konzentriert und gereinigt werden, um ein handelsfähiges Natriumhydroxid zu erhalten; Natriumchloridlösung wird wieder verwendet. Dies ist ein wesentlicher Nachteil, weil beträchtliche Kosten für Konzentration und Reinigung anzusetzen sind.

Mit fortschreitender Entwicklung, wie mit dem Aufkommen dimensionsstabiler Anoden, die eine Verringerung des Elektrodenabstandes gestatten, und dem Aufkommen von hydraulisch undurchlässigen Membranen, wurden andere Zellenkonstruktionen in Erwägung gezogen. Die Geometrie von Diaphragmazellen läßt die Anordnung von ebenen Membranen zwischen den Elektroden als unzweckmäßig erscheinen.

Filterpressenelektrolysezellen mit ebenen Elektroden wurden als mögliche Zellen vorgeschlagen.

Eine Filterpressenelektrolysezelle ist eine Zelle, bestehend aus mehreren Einheiten in Serie, wie eine Filterpresse, in der jede Elektrode mit Ausnahme der Endelektroden an einer Seite als Anode und an der anderen Seite als Kathode wirkt und der Zwischenraum zwischen diesen bipolaren Elektroden in eine Anodenkammer und eine Kathodenkammer durch eine Membran getrennt wird. In die Anodenkammer wird Alkalihalogenidlösung eingeleitet, an der Anode Halogen entwickelt. Die Alkaliionen werden selektiv durch die Membran in die Kathodenkammer transportiert und vereinigen sich dort mit den an der Kathode durch Wasserelektrolyse gebildeten Hydroxylionen zu Alkalihydroxid. In diesen Zellen ist das erhaltene Alkalihydroxid genügend rein für ein Handelsprodukt, so daß keine aufwendigen Aufarbeitungsstufen einschließlich einer Salzzrückgewinnung erforderlich sind. Zellen, deren bipolare Elektroden mit den Diaphragmen oder Membranen sandwichartig wie in einer Filterpresse angeordnet sind, können in Serie geschaltet sein, wobei die Anode einer Zelle verbunden ist mit der Kathode der Nachbarzelle durch ein gemeinsames Bauteil. Diese Anordnung bezeichnet man im allgemeinen als bipolare Konfiguration. Eine bipolare Elektrode ist eine Elektrode ohne direkter metallischer Verbindung mit der Stromquelle, deren eine Fläche als Anode und die andere Fläche als Kathode wirkt, während der elektrische Strom durch die Zelle fließt.

Während die bipolare Konfiguration zu einer sehr wirtschaftlichen elektrischen Verbindung der Elektrodenserie führt, kommt es jedoch zu schweren Korrosionsproblemen mit Bauteilen, die mit dem Anolyt in Berührung stehen. Der Anolyt enthält normalerweise korrosive Konzentrationen an freiem Halogenid; Metallwerkstoffe, wie Eisen, sind für die Aufnahme derartiger

Lösungen ungeeignet.

Es wurde zur Überwindung dieser Probleme bereits vorgeschlagen, Ventilmetalle oder deren Legierungen für die Aufnahme des Anolyten heranzuziehen, entweder durch Herstellung der gesamten Elektrode aus einem solchen korrosionsbeständigen Werkstoff oder indem eine Schicht eines Ventilmetalls auf einen Grundkörper innerhalb der Anodenkammer gebunden ist. Die Anwendung großer Mengen kostspieliger Ventilmetalle in großtechnischen Zellenkonstruktionen ließ jedoch eine solche Lösung wirtschaftlich uninteressant erscheinen. Die überzogenen Grundmetalle unterliegen andererseits auch einer Zerstörung durch Abschälen der Schutzschicht, so daß sie auch nicht entsprechen. Es wurde festgestellt, daß die Anwendung eines freien Raums zwischen den Rückenplatten als Isolator gegen eine Wasserstoffversprödung zu wirken vermag, da sich die Wasserstoffionen zu dem nicht-aggressiven molekularen Wasserstoff vereinigen, welcher leichter abgeführt werden kann, als diese ^{Ionen} durch den freien Raum gelangen. Durch diese Maßnahme kann das Versprödungsproblem gelöst werden, jedoch verbleibt das Problem einer entsprechenden Verbindung der Rückenplatten. Widerstandsschweißen würde entsprechen, jedoch sind die Verfahren zum Verschweißen unterschiedlicher Metallwerkstoffe, wie Stahl, Kupfer und Titan, nicht zufriedenstellend.

Die elektrische und mechanische Verbindung dieser bipolaren Elektroden wurde erreicht durch ein Verschraubungssystem, wobei die Elektrode verschraubt ist durch eine Mulde, welche einen Abstand ergibt, daß ein Abstandhalter aufgenommen werden kann, und durch eine zweite Mulde mit der anderen Elektrode. Eine andere Methode ^{be}steht in der Anwendung einer äußeren Schiene außerhalb der Elektrolysezelle. Die elektrischen Verbindungen durch innere Verschrau-

- 5 -
- 6 -

bung sind nicht wünschenswert, weil umfangreiche Abdichtungen erforderlich sind, um ein Eindringen von Elektrolyt in die Kathodenkammer, der dort schwere Korrosion hervorrufen kann, zu vermeiden. Dies erhöht die Zellenkosten und macht eine aufwendige Wartung erforderlich. Äußere elektrische Verbindungen sind auch nicht wünschenswert wegen der höheren Energieverluste infolge zusätzlicher konstruktionsbedingter Spannungsabfälle.

Es bestand also ein großer Bedarf nach einem Verfahren zur Verbindung bipolarer Elektrodenrückenplatten im Abstand voneinander bei wirtschaftlich tragbaren Kosten.

Die Erfindung betrifft nun bipolare Elektroden für Filterpressen-Elektrolysezellen mit vereinfachter Verbindung der zwei Platten, so daß die bipolaren Elektroden einer großtechnischen Produktionselektrolyse zu widerstehen vermögen und die Herstellungskosten wesentlich gesenkt sind gegenüber den bisherigen Lösungsvorschlägen. Die erfindungsgemäßen bipolaren Elektroden mit ihren neuen Verbindungen zeigen gute Stromausbeute:

Es wurde festgestellt, daß die Anoden- und Kathodenrückenplatten einer bipolaren Elektrode für Filterpressen-Elektrolysezellen mechanisch und elektrisch verbunden werden können, indem eine Reihe von Streifen eines metallischen elektrischen Leiters im Abstand voneinander in einem Abstand von zumindest 25,4 ^{und} um von einer der Rückenplatten parallel dazu angeordnet werden, woraufhin auf die äußere Fläche von einer der Metallschichten eine Lage eines Sprengmittels mit einer Detonationsgeschwindigkeit von weniger als 120 % der Schallgeschwindigkeit von dem Metall mit der höchsten Schallgeschwindigkeit im System aufgelegt wird, das Sprengmittel so gezündet wird, daß die Detona-

709825/0745

4.

tion parallel zu den Streifen fortschreitet und damit der Kollisionsdruck der Streifen auf der Rückenplatte größer ist als die Elastizitätsgrenze des Metalls mit der niedersten Elastizitätsgrenze, woraufhin die andere Rückenplatte mit einer Reihe von Streifen eines metallischen elektrischen Leiters versehen wird.

Die Erfindung wird anhand der Figuren weiter erläutert.

Fig. 1 zeigt eine perspektivische Ansicht der Anoden- und Kathodenrückenplatten einer bipolaren Elektrode mit der mechanischen und elektrischen Verbindung, erhalten durch Sprengplattieren von Metallstreifen dazwischen nach der Erfindung;

Fig. 2 zeigt eine perspektivische Ansicht einer anderen Ausführungsform einer bipolaren Elektrode nach der Erfindung;

Fig. 3 zeigt einen seitlichen Querschnitt der bipolaren Elektrode nach 3-3 der Fig. 2.

Die erfindungsgemäße bipolare Elektrode 10 weist eine durchbrochene Anode 12 in Form eines Metallnetzes auf. Die Anoden 12 können aus üblichen elektrisch leitenden und elektrolytisch aktivengegenüber dem Elektrolyt beständigen Stoffen bestehen, vorzugsweise einem Ventilmetall, wie Titan, Tantal oder deren Legierungen, auf deren eine Fläche sich ein Edelmetall oder Edelmetalloxid (allein oder zusammen mit einem Ventilmetalloxyd) befindet oder ein anderer elektrokatalytischer korrosionsbeständiger Werkstoff. Bevorzugt werden dimensionsstabile Anoden, die weitgehend angewandt werden. Durchbrochene Anoden werden im allgemeinen vorgezogen wegen ihrer größeren elektrolytisch aktiven Oberfläche, die die elektrochemische Reaktion und die Strömung innerhalb der Kammern der

- 9 -
18.

Elektrolysezelle erleichtert. Auch die Kathode 14 besteht aus einem üblicherweise angewandten elektrisch leitenden korrosionsbeständigen Werkstoff, wie Eisen, Weichstahl, korrosionsbeständiger Stahl oder Nickel. Den Elektrodenplatten sind die Anodenrückenplatte 16 und die Kathodenrückenplatte 18 zugeordnet, die jeweils als Abstützung oder Träger für die Anode bzw. Kathode wirksam sind. Im allgemeinen besteht die Anodenrückenplatte aus dem gleichen Werkstoff wie die Anode, so daß übliches Widerstandsschweißen für die Verbindung von Anode und Anodenrückenplatte angewandt werden kann. Ebenso sollte für eine leichte Verbindung der Werkstoff der Kathode und der Kathodenrückenplatte gleich sein. Die bipolare Elektrode nach der Fig. 1 wird zum Einbau in eine Filterpressen-Elektrolysezelle entweder mit einem Rahmen um die Außenkanten versehen oder die Rückenplatten 16, 18 werden vertieft ausgeführt, so daß Flanschen so eingespannt werden können, daß ein flüssigkeitsdichter Eingriff zwischen den Reihen der bipolaren Elektroden erreicht werden kann. Zur Vereinfachung der Darstellung sind diese Tragvorrichtungen oder Rahmen nicht gezeigt. Die Verbindung der Elektroden mit ihren zugeordneten Rückenplatten erfolgt über Abstandhalter oder Stromverteiler 20, die zweckmäßigerweise aus dem Werkstoff der jeweiligen Anode und Rückenplatten bestehen. Dies erleichtert ein übliches Schweißen zur Verbindung der Elektroden mit ihren Rückenplatten.

Es ist wünschenswert, ein Ventilmetall für die Anode und die Anodenrückenplatte zu verwenden, da in dieser Kammer der Anolyt vorhanden ist, der normalerweise eine hochkorrosive Konzentration von freiem Halogenid besitzt. Die Anodenrückenplatte hat im allgemeinen eine Stärke von 1 bis 2 mm im Falle von Titan. Für die Kathode und die Kathodenrückenplatte benötigt man nicht ein kostspieliges Ventilmetall, da der Katholyt nahezu nicht korrosiv ist. Es eignet

709825/0745

sich im allgemeinen dafür Stahl. Die Kathodenrückenplatte hat üblicherweise eine Stärke von 2 bis 12,7 mm, vorzugsweise etwa 6,35 mm, im Falle von Stahl. Da angenommen werden kann, daß die an der Kathode gebildeten Wasserstoffionen zu der Anodenrückenplatte wandern und die bisherigen Anodenkonstruktionen einer Wasserstoffversprödung unterlagen, so erscheint es notwendig, eine Barriere für diese Ionen zwischen der Anodenrückenplatte und der Kathodenrückenplatte vorzusehen. Jedes isolierende Material, welches die Wanderung von atomarem Wasserstoff unterbindet, ist geeignet. Es wurde festgestellt, daß Luft ein außerordentlich billiges Trennmateriale ist, da sich darin atomarer Wasserstoff zu molekularem Wasserstoff verbindet, der leicht abgeführt wird, bevor der atomare Wasserstoff die Anodenrückenplatte erreicht. Kupfer ist auch ein gutes Trennmateriale für eine Strömung atomaren Wasserstoffs, jedoch relativ kostspielig, wenn man eine Kupferplatte zwischen den Rückenplatten vorsieht. Kupfer leitet zwar hervorragend, so daß man für diese Art isolierende Trennschicht mit geringem Aufwand eine Reihe von im Abstand angeordneten Metallleiter 22, wie Kupferstreifen, zwischen den Rückenplatten vorsehen kann, wodurch die elektrische Verbindung gegeben ist und eine isolierende Zone zwischen den Rückenplatten entsteht, die eine Wasserstoffversprödung der Anodenrückenplatte verhindert. Diese Leiter 22 können aus einem beliebigen Werkstoff entsprechender Leitfähigkeit bestehen, während für eine Trennung gegen die Wasserstoffatom-Bewegung Kupfer im Hinblick auf Kosten und elektrische Leitfähigkeit bevorzugt wird.

Nach der Erfindung werden die Leiter 22 an die Anodenrückenplatte und die Kathodenrückenplatte in einem oder zwei Verfahrensstufen mit Hilfe des Sprengplattierungsverfahrens gebunden. Nach diesem Verfahren werden zwei Metallplatten in einem geringen Abstand voneinander angelegt. Auf der äußeren Fläche der einen Platte wird eine Sprengmittelschicht

- 9 -

10.

vorgesehen, wobei die Detonationsgeschwindigkeit des Sprengmittels kleiner als 120 % der Schallgeschwindigkeit des Metalls im System ist, welches die höchste Schallgeschwindigkeit besitzt, woraufhin die Sprengmittelschicht gezündet wird. Im allgemeinen ist es wünschenswert, ein Sprengmittel zu verwenden, dessen Detonationsgeschwindigkeit nicht größer ist als die Schallgeschwindigkeit des Metalls mit der höchsten Schallgeschwindigkeit. Die Metallplatten müssen zumindest soweit voneinander entfernt sein, daß das durch das Sprengmittel in Bewegung gesetzte Material der einen Platte eine ausreichende Geschwindigkeit vor Erreichen der anderen Platte erhält. Im allgemeinen ist ein Abstand von zumindest 25,4 µm zufriedenstellend. Der maximale Abstand hängt ab von der Verringerung der Geschwindigkeit der bewegten Schicht durch die Luft zwischen den beiden Platten. Durch Erhöhung der Sprengmittelladung oder Evakuieren des Raums zwischen den Platten führen auch größere Abstände als 25,4 µm zum Ziel. Im allgemeinen ist jedoch ein Abstand von mehr als 12,7 mm nicht zweckmäßig oder notwendig.

Ein Kupferblech (1,5875 mm) kann auf eine Weichstahlplatte (12,7 mm) wie folgt plattiert werden: Das Kupferblech wird auf einer Seite mit einer 25,4 mm Polystyrol-Schaumstoffschicht versehen, auf der sich eine Sprengmittelschicht mit einem Ladungsgewicht von 1,55 g/cm² befindet (10 g/sq.in). Bei dem Sprengmittel handelt es sich ^{z.B.} um eine gleichmäßige Platte eines flexiblen Sprengstoffs aus 20 % feinem Pentaerythrittetranitrat, 70 % Bleimennige und einem Bindemittel in Form von 10 % eines 1:1-Gemisches von Butylkautschuk und einem thermoplastischen Terpenharzgemisch von Polymeren des β -Pinens (C₁₀H₁₆)_n (US-PS 3 093 521). Eine ^{solche} Sprengmittellatte hat eine Detonationsgeschwindigkeit von etwa 4 100 m/s. Die Kanten des Sandwich aus Kupferblech, Polystyrol und Sprengmittellatte werden mit

709825/0745

einem wasserdichten Klebstreifen abgedeckt und auf eine Weichstahlplatte aufgelegt, wobei der Abstand zwischen Stahl und Kupfer 0,35 mm betrag^{en} und durch eine Lage von gleichmäßigem Eisenpulver gebildet werden kann (Körnung des Eisenpulvers 0,149 bis 0,35 mm). Die Kanten dieser Anordnung werden mit einem Klebstreifen abgedichtet, ein elektrischer Zünder an einer Ecke der Sprengmittelschicht befestigt, das Ganze in Wasser eingetaucht und gezündet. Man erhält eine hervorragende Bindung des Kupfers auf Stahl.

Nun wird das Ganze sinngemäß zur Bindung von einem Titanblech (1,27 mm) auf dem Kupferblech wiederholt. Der Abstand zwischen Kupfer und Titan soll 0,35 mm betragen und das Ladungsgewicht des Sprengmittels $1,55 \text{ g/cm}^2$. Nach der Detonation sind die Titan- und Kupferbleche gleichmäßig und fest gebunden. Auf diese Weise erhält man auch einen Verbundkörper, in dem die Rückenplatte 18 aus Weichstahl auf den Leitern 22 aus Kupfer und diese auf der Rückenplatte 16 aus Titan befestigt ist.

Bei einem Einstufenverfahren werden die drei zu verbindenden Teile in den genannten Abständen unter Verwendung von Eisen- und Titanteilchen angeordnet; das Ladungsgewicht auf der Rückenplatte 16 ist in diesem Fall etwa $2,33 \text{ g/cm}^2$, auch auf diese Weise erreicht man eine einwandfreie Bindung.

Zu Sprengplattierung siehe auch US-PS 3 137 937.

Auf diese Weise werden nur etwa 10 % der Fläche der Anodenrückenplatte bzw. der Kathodenrückenplatte benötigt für die Bindung der Leiter 22, die einen hervorragenden Stromanschluß gewährleisten. Die Luft zwischen den Kupferstreifen schirmt das Titan ab von dem Wasserstoff.

Eine andere Ausführungsform der erfindungsgemäßen bipolaren

. 12.

Elektroden ist in der Fig. 2 gezeigt, wobei die Kathodenrückenplatte 18 eine Kautschukschicht 24 trägt und im mittleren Teil dieser Kautschukschicht sich eine Anodenanschlußplatte 26 befindet, zwischen denen sich ein Übergangselement 28 aus Kupfer befindet. Die Anodenanschlußplatte 26 ist Sprengplattiert auf das Kupferübergangselement 28 an die Rückenplatte 18 für eine Anschlußfläche zur Anode. Wie sich aus Fig. 2 ergibt, kann man eine kleinere Anschlußplatte 26 aus Titan anwenden, wodurch Kosten für Werkstoffe gespart werden. Der Korrosionsschutz wird erreicht durch die Kautschukverkleidung oder ein anderes nicht-metallisches Überzugsmaterial auf der Kathodenrückenplatte in der Art, wie dies in den Fig. 2 und 3 gezeigt ist. Die Kautschukschicht 24 wird auf die Rückenplatte 18 so aufgebracht, daß zwischen Gasleitungen 30 vorgesehen werden, über die gasförmige Stoffe, wie Wasserstoff, von der Kathodenrückenplatte abgeleitet werden können. Bei dieser Ausführungsform schützen die Kupferübergangselemente 28 das Titan vor einer Wasserstoffversprödung.

PATENTANSPRÜCHE:

709825/0745

13
Leerseite

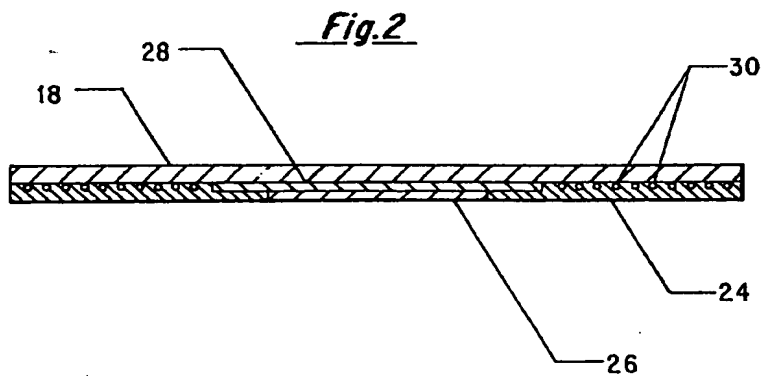
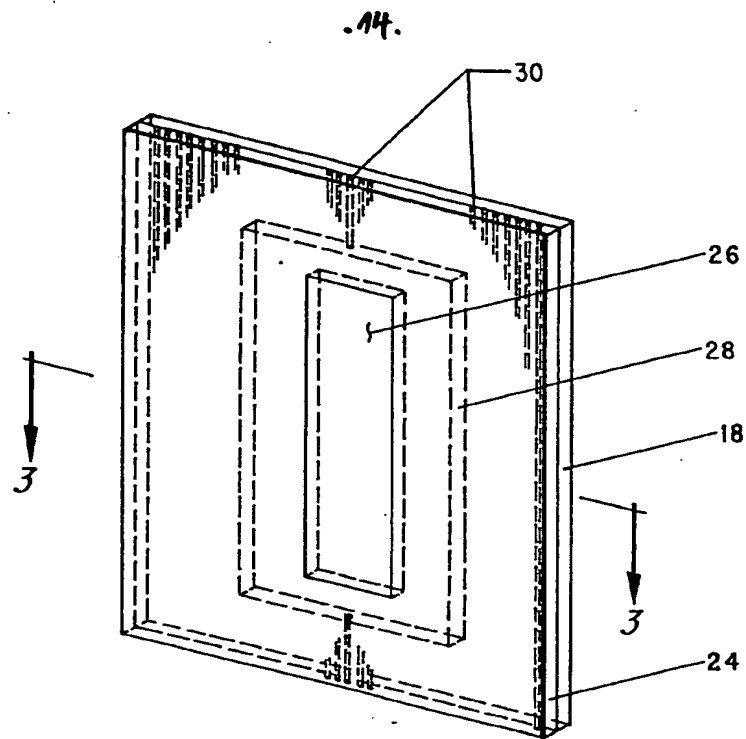


Fig. 3

Nummer: 28 58 109
Int. Cl. 2: C 25 B 11/02
Anmeldetag: 10. Dezember 1976
Offenlegungstag: 23. Juni 1977

- 15 -

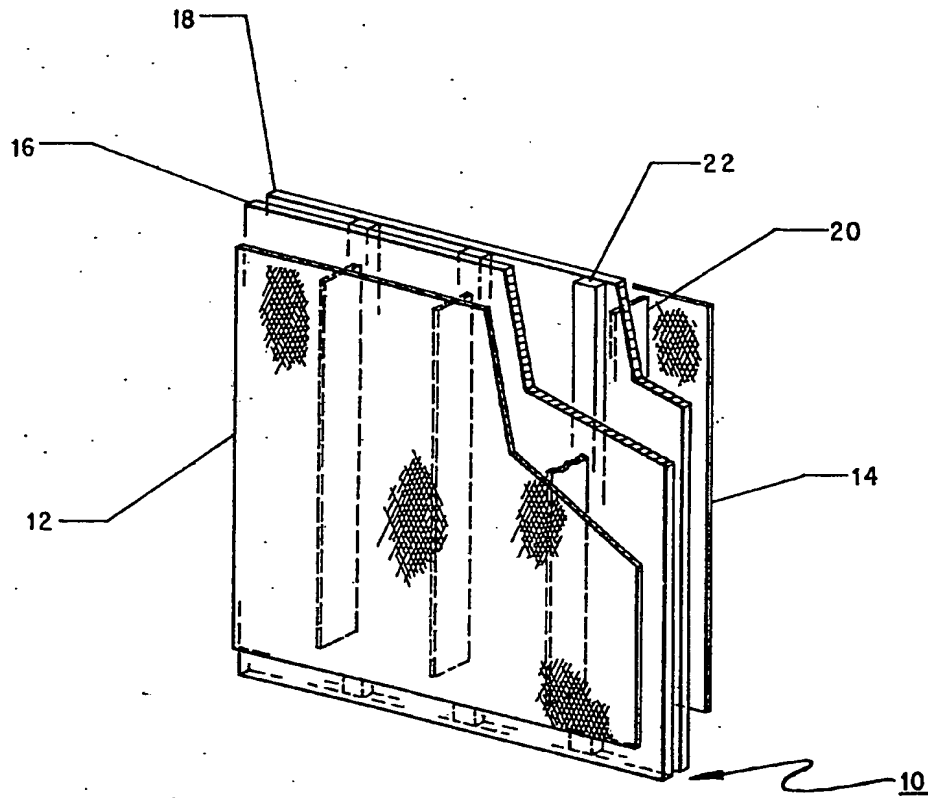


Fig. 1

709825/0745